

*Sintesis Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  dan Aplikasinya untuk Mendegradasi Limbah Zat Warna Methylene Blue (Didin S. W.)*



Homepage: <http://jusami.batan.go.id>

Jurnal Sains Materi Indonesia

Akreditasi LIPI No.: 395/D/2012  
Tanggal 24 April 2012  
ISSN: 1411-1098

## **SINTESIS KOMPOSIT $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ DAN APLIKASINYA UNTUK MENDEGRADASI LIMBAH ZAT WARNA *METHYLENE BLUE***

**Didin Sahidin Winatapura dan Saeful Yusuf**

*Pusat Sains dan Teknologi Bahan Maju - Badan Tenaga Nuklir Nasional  
Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang Selatan 15314, Indonesia  
e-mail : [didinsw@batan.go.id](mailto:didinsw@batan.go.id)*

*Diterima: 1 Nopember 2013*

*Diperbaiki: 7 Januari 2014*

*Disetujui: 28 Pebruari 2014*

### **ABSTRAK**

**SINTESIS KOMPOSIT  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  DAN APLIKASINYA UNTUK MENDEGRADASI LIMBAH ZAT WARNA *METHYLENE BLUE*.** Telah dilakukan sintesis komposit nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  dengan metoda presipitasi. Bahan komposit nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  dapat digunakan sebagai bahan untuk mendegradasi polutan organik yang larut di dalam air. Hasil pengukuran sampel dengan difraktometer sinar-X (*XRD*) menunjukkan adanya struktur  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  magnetit dan  $\text{TiO}_2$  anatase, sedangkan data *EDS* menunjukkan bahwa komposit mengandung atom Fe, Ti, Si dan O. Dapat disimpulkan bahwa komposit terdiri dari fasa  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,  $\text{SiO}_2$  amorf dan fasa  $\text{TiO}_2$ . Pengamatan sampel dengan *TEM* terhadap komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  belum secara jelas menunjukkan bahwa komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  membentuk struktur *coreshell* meskipun nano partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  sebagai inti diselimuti oleh lapisan  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{TiO}_2$ . Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  memiliki nilai magnetisasi saturasi sekitar 20 emu/gram jauh lebih kecil bila dibandingkan bahan penyusunnya  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  yang mencapai sekitar 69 emu/gram. Namun demikian bahan tersebut masih mudah dipisahkan dari pelarutnya menggunakan magnet permanen. Kondisi optimum adsorpsi dan degradasi MB oleh komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  dicapai pada pH 9. Komposit nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  mampu mengadsorpsi dan mendegradasi polutan organik MB sebanyak 98 % dalam lingkungan alkalin.

**Kata kunci:** Komposit, Nanopartikel,  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ , Adsorpsi, Degradasi, *Methylene blue*

### **ABSTRACT**

**SYNTHESIZE OF  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  COMPOSITES AND ITS APPLICATION TO DEGRADE METHYLENE BLUE (MB) DYE WASTE.**  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  nanoparticle composite has been synthesized by precipitation method.  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  nanoparticles composite materials can be used as material to degrade organic pollutants dissolved in water. The X-Rays Diffractometer (*XRD*) result showed that the anatase  $\text{TiO}_2$  and  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  phases were identified in  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  composite, while the Energy Dispersive Spectroscopy (*EDS*) observed four kinds of elements such as Fe, Si, Ti and O. It suggests that the  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  composite consists of  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,  $\text{SiO}_2$  and  $\text{TiO}_2$ . TEM observation of the composite  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  has not clearly demonstrated that  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  composite formed a core-shell structure, where  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  core was covered by  $\text{SiO}_2$  and  $\text{TiO}_2$  as outer shell.  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  composite has saturation magnetic value of about 20 emu/g which is lower than  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  of about 69 emu/g. However, it is still easily separated by permanent magnet from its solvent. The optimum condition of methylene blue adsorption and degradation by  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  composite was reached at pH 9. The  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  nanoparticle composite is able to adsorb and degrade the organic pollutant in methylene blue as much as 98% in alkaline environment.

**Key words:** Composite, Nanoparticle,  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ , Adsorb, Degradation, Methylene blue

## PENDAHULUAN

Berbagai metode konvensional : fisik, kimia, dan biologi, seperti adsorpsi, koagulasi, proses membran, dan oksidasi-ozonisasi saat ini tersedia untuk pengolahan air limbah pewarna. Namun, proses konvensional tidak cukup untuk memurnikan air limbah, karena hanya memindahkan senyawa dari air ke tahap lain, sehingga menyebabkan masalah polusi sekunder [1].

Dalam beberapa tahun terakhir, upaya penelitian didedikasikan untuk penelitian semikonduktor fotokatalis di bidang lingkungan. Diantara sekian banyak bahan fotokatalis semikonduktor, bahan  $\text{TiO}_2$  telah banyak menarik perhatian karena stabilitas dan efisiensi fotokatalitik tinggi dalam menangani masalah lingkungan seperti pemurnian udara, disinfeksi air dan remediasi limbah berbahaya [2,3]. Dalam prosesnya  $\text{TiO}_2$  mendegradasi polutan seperti pewarna, limbah organik, bakteri dan lain sebagainya menjadi senyawa yang ramah lingkungan seperti  $\text{H}_2\text{O}$  atau  $\text{CO}_2$ . Namun demikian penggunaan  $\text{TiO}_2$  menjadi kurang efisien karena  $\text{TiO}_2$  yang berfungsi sebagai fotokatalis sulit diambil kembali. Untuk mengatasi hal tersebut di atas maka dikembangkan bahan komposit magnet – fotokatalis  $\text{TiO}_2$ . Bahan sistem komposit magnet dengan fotokatalis  $\text{TiO}_2$  diharapkan mampu mendegradasi polutan organik menjadi senyawa dengan berat molekul rendah yang ramah lingkungan dan setelah digunakan bahan katalis mudah diambil dan didaur ulang menggunakan medan magnet luar. Dengan demikian penggunaan bahan katalis menjadi lebih efisien dan mengurangi kemungkinan terjadinya pencemaran oleh bahan katalis itu sendiri.

Selain sistem komposit dengan bahan fotokatalis, bahan magnet juga dapat dikompositkan dengan bahan adsorben seperti  $\text{SiO}_2$ . Sifat bahan komposit magnet  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dengan adsorben  $\text{SiO}_2$  telah dilakukan oleh beberapa peneliti [4,5]. Pembuatan, karakterisasi dan penggunaan nano komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2$  sebagai adsorben untuk menghilangkan zat warna metilen biru dan metil oranye juga telah dilaporkan [6,7].

Berbagai usaha telah dilakukan untuk meningkatkan efisiensi dan efektifitas dari komposit magnet fotokatalis dan komposit magnet adsorben dengan menggabungkan keduanya membentuk sistem komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ . Zhinghua Wang [8] telah melaporkan pembuatan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  melalui metoda sol-gel dengan struktur *core-shell*, demikian juga Xiubing Huang [9] memodifikasi komposit magnet- $\text{SiO}_2\text{-TiO}_2$  dengan penambahan *Polyaniline* (PANI) menggunakan bahan superparamagnetik  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dengan lapisan dalam  $\text{SiO}_2$  dan lapisan luar  $\text{TiO}_2$ . Hasil pengujian dari kedua peneliti tersebut memperlihatkan kemampuan fotodegradasi dengan struktur *core-shell* yang superior terhadap limbah cair organik.

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mensintesis bahan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  dan melakukan uji degradasi terhadap larutan limbah

pewarna *methylene blue*. Pada penelitian ini akan dilakukan sintesis komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  dengan memodifikasi metode yang sudah dilakukan. Selanjutnya bahan hasil sintesis akan dianalisis fasa-fasanya, sifat magnetik dan morfologi nanopartikel. Uji komposisi unsur dari komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  dilakukan dengan menggunakan *Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy* (EDS). Kemampuan komposit mendegradasi polutan organik dipelajari dengan cara mengamati perbedaan absorbansi menggunakan spektrofotometer UV-Vis. Pada uji adsorpsi dan degradasi dipilih *Methylene Blue* (MB) sebagai sampel polutan organik, karena MB merupakan representasi pewarna yang banyak digunakan dalam industri seperti tekstil. MB merupakan pewarna yang biasa digunakan dalam pencelupan kertas, linen dan tekstil atau pelukisan pada bambu, kayu dan dalam manufaktur tinta.

## METODE PERCOBAAN

### Bahan dan Alat

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini diperoleh dari Merck, antara lain adalah :  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ , *Methylene Blue* (MB), sodium hidroksida (NaOH), *tetra-ethyl orthosilicate* (TEOS) dan *tetra-butyl orthotitanate* (TBOT).

Peralatan yang digunakan antara lain adalah *beaker glass* yang dilengkapi dengan *water batch*, pompa peristaltik, *over head stirrer* dan *shaker* yang dilengkapi dengan lampu UV.

### Tata Kerja

#### Sintesis Nanopartikel $\text{Fe}_3\text{O}_4$

Sintesis nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dilakukan melalui metoda presipitasi kimia dari bahan  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ . Kedua bahan dilarutkan dalam air bebas mineral, diaduk, dipanaskan sampai suhu  $70^\circ\text{C}$  sambil dialiri gas  $\text{N}_2$ . Nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  diendapkan dengan titrasi NaOH 1-M hingga larutan mencapai pH 12, dan kemudian didiamkan pada suhu kamar selama 24 jam. Endapan nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dipisahkan dengan air bebas mineral dengan bantuan magnet luar sampai endapan mencapai pH 7. Sebagian serbuk  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dikeringkan dan dikarakterisasi dengan peralatan XRD, VSM, TEM,

#### Sintesis Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ .

Prosedur sintesis komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  mengikuti Rijing Wang [10] dilakukan dengan beberapa modifikasi. Pada prosedur ini dispersi  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dilakukan secara langsung tanpa pengeringan  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  terlebih dahulu, sehingga tidak diperlukan alat ultrasonik. Reaksi dilakukan dalam suasana pH netral dan waktu kontak ditambah 24 jam. Endapan nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dalam keadaan basah didispersikan dalam 125 ml etanol

kemudian ditambahkan 25 mL TEOS pada suhu kamar sambil diaduk selama 7 jam. Endapan  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2$  yang terbentuk didiamkan selama 24 jam sebelum dibilas dengan air bebas mineral dan etanol. Sebagian endapan  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2$  dikeringkan dan diuji dengan XRD dan sebagian lagi didispersikan ke dalam 125 ml etanol. Ke dalam larutan yang mengandung  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2$  ditambahkan tetes demi tetes larutan yang memiliki komposisi 16 mL TBOT dan 100 mL 2-propanol sambil diaduk dan dipanaskan pada suhu 70 °C selama 7 jam. Endapan yang terbentuk didiamkan selama 24 jam, dipisahkan dengan cara dekantasi dan dibilas beberapa kali dengan etanol. Selanjutnya endapan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  yang terbentuk dikeringkan dan dikalsinasi dalam oven pada suhu 500 °C selama 2 jam sehingga terbentuk serbuk berwarna merah bata.

#### Karakterisasi Sifat Magnet, Fasa dan Komposisi Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$

Sampel komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2$  dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  yang telah diperoleh dikarakterisasi fasanya dengan peralatan difraktometer sinar-X (XRD), SHIMADZU XD 610 menggunakan sumber radiasi Cu dengan  $K\alpha = 0,5418\text{\AA}$  dan *step scan* 0,05 derajat/detik. Sifat magnet sampel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  diuji dengan peralatan *Vibrating Sample Magnetometer (VSM)*, merk OXFORD 1.2T dengan medan magnet yang dipakai sebesar 1 Tesla. Komposisi komposit yang terbentuk diamati dengan peralatan *Scanning Electron Microscope (SEM)* yang dilengkapi dengan EDS, JEOL JSM 6510. Sedangkan morfologi komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  diamati dengan peralatan *Transmission Electron Microscope (TEM)*, JEOL JEM 1400.

#### Uji Fungsi Adsorpsi dan Degradasi dari Komposit $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$

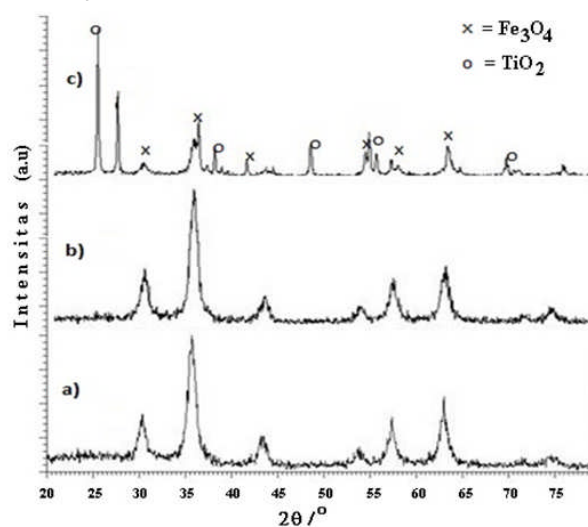
Ke dalam 4 buah gelas erlen meyer masing-masing dimasukkan sebanyak 50 ml larutan 10 ppm MB. Selanjutnya pH dari larutan MB di atur sedemikian hingga pH nya menjadi 4, 7, 9 dan 10 dengan cara menambahkan larutan HCl atau NaOH. Sebanyak 100 mg komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  dimasukkan ke dalam tiap-tiap gelas erlen meyer yang berisi larutan MB. Semua gelas erlenmeyer diletakkan pada alat *shaker* sambil dikocok dan disinari dengan lampu UV selama 40 menit. Setelah reaksi larutan MB dipisahkan dari komposit MB dan diukur absorbansinya dengan peralatan UV-Vis pada panjang gelombang 664 nm. Besarnya perbedaan absorbansi berbanding lurus dengan besarnya MB yang didegradasi oleh komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ . pH optimal reaksi degradasi ditunjukkan oleh kondisi perubahan absorbansi yang paling besar.

Dengan asumsi bahwa pH 9 adalah pH yang optimal untuk proses degradasi maka dilakukan

percobaan uji degradasi dengan memvariasi jumlah komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  yaitu 50, 100, 150, 200, 250 dan 300 mg. Pengocokan dengan *shaker* dan penyinaran dengan lampu UV dilakukan selama 40 menit. Selanjutnya dilakukan pula uji degradasi yang memvariasi waktu pengocokan selama 10, 20, 30 dan 40 menit dengan dan tanpa menggunakan lampu UV.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

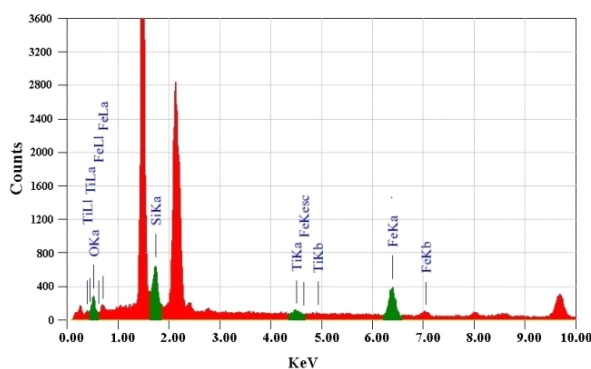
Hasil pengukuran pola difraksi dari  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2$  dan  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  masing-masing ditunjukkan pada Gambar 1. Pola XRD  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  hasil sintesis dengan metoda presipitasi pada Gambar 1(a) menunjukkan kesesuaian dengan data standar JCPDS Card No. 19-629 dan data ICDD 19029 yang berarti bahwa fasa  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  yang terbentuk adalah magnetit. Puncak-puncak dengan intensitas tinggi muncul pada sudut 2 $\theta$  (bidang hkl) sebagai berikut : 30,432° (220) ; 35,813° (311); 43,530° (400); 53,886° (422); 57,420° (511) dan 63,125° (440). Pada Gambar 3(b) terlihat bahwa pola difraksi  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2$  sangat mirip sekali dengan pola difraksi  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dengan kata lain tidak ada puncak  $\text{SiO}_2$  yang teridentifikasi. Hal ini menunjukkan bahwa  $\text{SiO}_2$  adalah fasa amorf, sehingga puncak-puncak yang muncul dari komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2$  hanya diwakili oleh puncak dari  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Pola XRD pada Gambar 3(c) menunjukkan bahwa selain teridentifikasi puncak-puncak fasa  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , teridentifikasi pula puncak lain dengan kristalinitas yang baik diyakini sebagai puncak-puncak dari  $\text{TiO}_2$  anatase yang memiliki kesesuaian dengan standar JCPDS 21-1272. Puncak-puncak utama  $\text{TiO}_2$  anatase adalah pada sudut 2 $\theta$  dan bidang (hkl) sebagai berikut: 25,295° (101); 36,607° (004) dan 54,319° (155). Penjelasan di atas menunjukkan bahwa dari pengujian XRD teridentifikasi fasa  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  magnetit dan  $\text{TiO}_2$  anatase.



Gambar 1. Pola XRD (a).  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , (b).  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2$  dan (c).  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$

Pada Gambar 2 ditunjukkan hasil uji komposisi dengan menggunakan EDS. Hasil pengamatan

menunjukkan bahwa pada bahan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  hanya mengandung unsur-unsur Fe, Si, Ti dan O, seperti dicantumkan dalam Tabel 1. Hal ini menunjukkan bahwa komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  merupakan perpaduan dari beberapa oksida yaitu  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{TiO}_2$ .

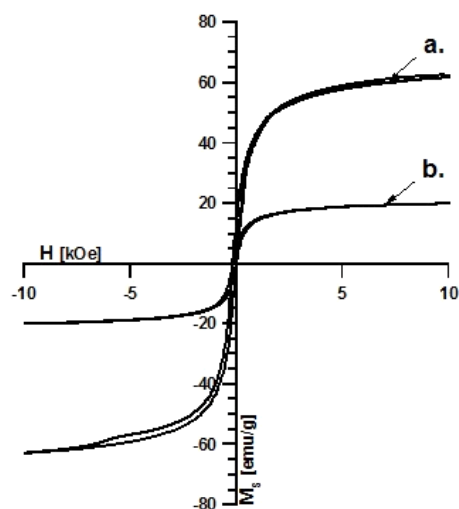


Gambar 2. Spektrum EDS dari komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$

Tabel 1. Kandungan unsur dalam komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$

| Unsur | Atom (%) |
|-------|----------|
| Fe    | 23,87    |
| Si    | 19,48    |
| Ti    | 16,32    |
| O     | 40,33    |

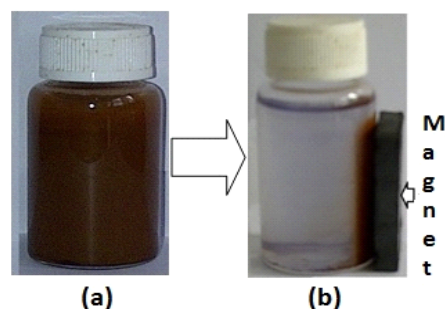
Pada Gambar 3 ditunjukkan kurva histeresis dari nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ . Dari kurva histeresis tersebut terlihat terjadi penurunan nilai magnetisasi saturasi dari sekitar 69 emu/gram untuk  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  menjadi sekitar 20 emu/gram untuk komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ . Penurunan sifat magnet ini sangat signifikan, dimana hal ini mudah dipahami karena  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{TiO}_2$  yang melingkupi nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  seperti



Gambar 3. Kurva histeresis dari (a). nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan (b). komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$

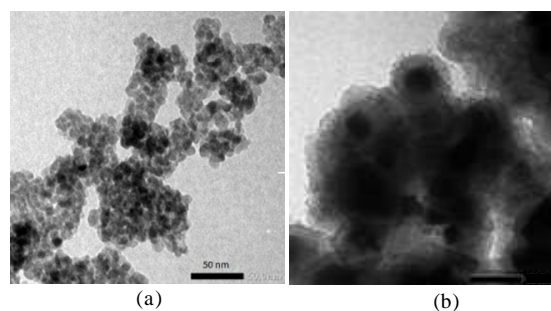
diasumsikan pada Gambar 3 merupakan bahan yang tidak bersifat magnetik. Disamping itu, dengan penambahan  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{TiO}_2$ , fraksi bahan magnetik  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  menjadi berkurang, sehingga nilai magnet saturasi dan remanen semakin rendah.

Gambar 4(a) memperlihatkan fotograf komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  yang didispersi dalam air bebas mineral setelah ultrasonikasi. Bahan nanopartikel tersebut dapat dengan mudah didispersi dengan air membentuk koloid yang stabil dalam beberapa menit. Apabila magnet permanen ditempatkan disampingnya seperti pada Gambar 4(b), partikel koloid tersebut dapat dengan mudah dikumpulkan oleh medan magnet luar, sehingga dengan mudah dapat dipisahkan dari pelarutnya. Hasil ini membuktikan bahwa nanopartikel komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  walaupun memiliki nilai magnetisasi saturasi jauh lebih rendah dari  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , namun masih tetap memiliki sifat magnetik yang cukup baik untuk dapat dipisahkan dari pelarutnya.



Gambar 4. (a) komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  yang terdispersi dalam air (b). komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  setelah diberi medan magnet eksternal

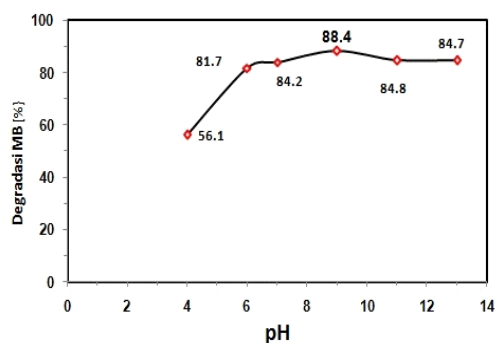
Pada Gambar 5(a) dan 5(b) ditunjukkan foto TEM komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ . Partikel komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  terlihat seperti butiran-butiran klaster yang terhubung satu sama lainnya (Gambar 5(a)). Ukuran  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  dalam orde nanometer menunjukkan bahwa komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  adalah komposit nanopartikel.



Gambar 5. Foto TEM (a) komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ , (b). perbesaran Gambar (a).

Data TEM pada Gambar 5(b) merupakan perbesaran dari Gambar 5(a) yang menunjukkan bahwa nanopartikel komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  memiliki struktur *multilayer*, dimana nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  sebagai *core* (berwarna hitam) diselubungi oleh lapisan tengah  $\text{SiO}_2$  dan

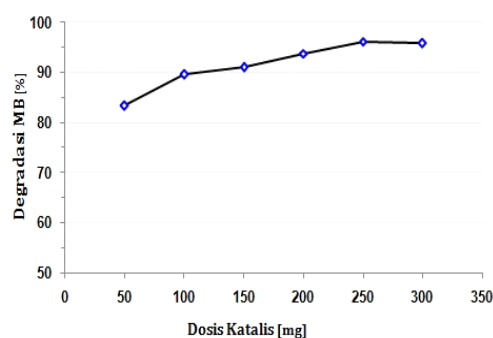
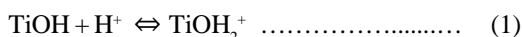




**Gambar 6.** Efek pH terhadap degradasi MB oleh komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$

shell terluar  $\text{TiO}_2$  (berwarna abu-abu). Dengan membandingkannya terhadap panjang penggaris 50 nm, maka setiap butiran komposit memiliki ukuran diameter sekitar 50 nm (Gambar 5(b)).

Gambar 6 menunjukkan hasil uji efek pH terhadap degradasi MB oleh komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ . Degradasi maksimum  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  terhadap MB tercapai pada pH 9 setelah disinari lampu UV selama 40 menit dengan persentase degradasi sekitar 88 %. Berdasarkan pada Gambar 6 tampak bahwa degradasi meningkat seiring dengan kenaikan pH dari 4 - 9 dan kemudian turun pada  $\text{pH} > 9$ . Hal ini sesuai dengan pengaruh pH pada keadaan ionisasi titanium [11,12]. Pada kondisi asam dimana  $\text{pH} < 7$ , keberadaan ion  $\text{H}^+$  akan membuat permukaan titania menjadi bermuatan positif. Sedangkan pada kondisi basa  $\text{pH} > 7$ , permukaan titania menjadi bermuatan negatif akibat pengaruh ion  $\text{OH}^-$  seperti ditunjukkan pada Persamaan (1) dan Persamaan (2) sebagai berikut :



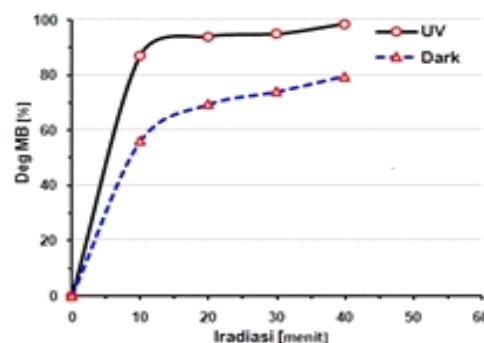
**Gambar 7.** Efek jumlah  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  terhadap degradasi MB pada pH 9

Lebih lanjut lagi, karena MB memiliki struktur yang bermuatan positif seperti ditunjukkan pada Tabel 2, maka reaksi degradasi lebih disukai terjadi pada kondisi alkalin.

Gambar 7 menunjukkan hasil uji efek dosis katalis terhadap degradasi MB pada pH 9. Evaluasi variasi jumlah komposit bertujuan untuk mendapatkan informasi tentang kebutuhan komposit terhadap penurunan MB. Pada Gambar 7 tampak bahwa degradasi MB meningkat

**Tabel 2.** Sifat pewarna kation Methylene Blue [13]

| Nama limbah    | Rumus Molekul                                    | Struktur | $\lambda_{\text{maks}}$ (nm) |
|----------------|--|----------|------------------------------|
| Methylene Blue | $\text{C}_{16}\text{H}_{18}\text{ClN}_3\text{S}$ |          | 664                          |



**Gambar 8.** Efek waktu iradiasi tanpa (dark) dan dengan sinar UV dari komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  terhadap degradasi larutan MB pada pH 9 selama 40 menit

seiring dengan bertambahnya kandungan komposit dalam larutan sehingga mencapai optimum pada 250 mg komposit dengan efisiensi 98 % untuk waktu degradasi selama 40 menit.

Hasil pengujian komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  untuk mendegradasi MB dengan dan tanpa lampu UV ditunjukkan pada Gambar 8. Lama degradasi memberikan pengaruh terhadap jumlah MB yang teradsorpsi dan terdegradasi. Dari data pengukuran dengan UV-Vis menunjukkan bahwa lama kontak 40 menit sudah cukup memberikan hasil adsorpsi dan degradasi yang optimal. Terlihat pula bahwa komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  mampu mengadsorpsi dan mendegradasi MB tanpa diberi sinar yang berasal dari lampu UV. Hal ini menunjukkan bahwa adanya adsorpsi MB oleh  $\text{SiO}_2$  mampu mengurangi konsentrasi MB di dalam larutan, selain terjadi pula reaksi degradasi oleh  $\text{TiO}_2$ . Penyinaran lampu UV terhadap reaktor mampu mempercepat terjadinya reaksi fotokatalisis oleh  $\text{TiO}_2$ . Adsorpsi dan degradasi MB tanpa adanya lampu UV mencapai 83%, sedangkan dengan adanya sinar dari lampu UV reaksi fotokatalitik bertambah besar. Komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  mampu mengadsorpsi dan mendegradasi sampai dengan 98% untuk waktu kontak selama 40 menit.

## KESIMPULAN

Telah dilakukan sintesis komposit nanopartikel yang dapat digunakan sebagai bahan untuk mendegradasi polutan organik yang larut di dalam air. Pengujian XRD terhadap bahan komposit mengidentifikasi adanya fasa  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan  $\text{TiO}_2$  anatase, sedangkan data EDS menunjukkan bahwa komposit mengandung atom Fe, Ti dan Si. Pengujian TEM terhadap

komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  jelas menunjukkan komposit membentuk struktur *core-shell*, dimana  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  sebagai intinya diselimuti oleh  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{TiO}_2$ . Nilai magnetisasi saturasi komposit  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  diperoleh sekitar 20 emu/gram, namun demikian bahan tersebut masih mudah dipisahkan dari pelarutnya menggunakan magnet permanen. Pada kondisi optimum, komposit nanopartikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  mampu mengadsorpsi dan mendegradasi polutan organik MB sebesar 98 % dalam lingkungan alkalin.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Tulisan ini merupakan salah satu hasil kegiatan penelitian yang didanai oleh DIPA tahun 2013-2014 yang berjudul "Pembuatan Prototip Bahan Nano Komposit Magnet untuk Pengolahan Limbah".

## DAFTAR ACUAN

- [1]. Y. Ruzmanova, M. Stoller, and A. Chianese, "Photocatalytic Treatment of Olive Mill Wastewater by Magnetic Core Titanium Dioxide Nanoparticles," *Chem. Eng. Trans.*, vol. 32, pp. 2269 – 2274, 2013.
- [2]. Z. Lu, G. Wang, J. Zhuang, and W. Yang, "Effects of the concentration of tetramethylammonium hydroxide peptizer on the synthesis of  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  core/shell nanoparticles," *Colloids Surfaces A Physicochem. Eng. Asp.*, vol. 278, no. 1–3, pp. 140–143, Apr. 2006.
- [3]. Ridwan. "Modifikasi Permukaan Super paramagnetic Iron Oxide Nanoparticle (SPION) dan Nanoparticle Zero Valent Iron (NZVI) untuk Pengolahan Limbah Nuklir dan Non-Nuklir". Laporan Teknis BlockGrand DIKTI," Serpong, 2009
- [4]. S.-L. Tie, H.-C. Lee, Y.-S. Bae, M.-B. Kim, K. Lee, and C.-H. Lee, "Monodisperse  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Fe-SiO}_2$  core/shell nanoparticles with enhanced magnetic property," *Colloids Surfaces A Physicochem. Eng. Asp.*, vol. 293, no. 1–3, pp. 278–285, Feb. 2007.
- [5]. C.-C. Chang, L. Zhao, and M.-K. Wu, "Magnetodielectric study in  $\text{SiO}_2$ -coated  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  nanoparticle compacts," *J. Appl. Phys.*, vol. 108, no. 9, pp. 94 – 105, 2010.
- [6]. A. Fisli, S. Yusuf, Y. K. Krisnandi, and J. Gunlazuardi, "Preparation and Characterization of Magnetite-Silica Nano-Composite as Adsorbents for Removal of Methylene Blue Dyes from Environmental Water Samples," *Adv. Mater. Res.*, vol. 896, pp. 525–531, 2014.
- [7]. W. Deligeer, Y. W. Gao, and S. Asuha, "Adsorption of methyl orange on mesoporous  $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$  nanocomposites," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 257, no. 8, pp. 3524–3528, Feb. 2011.
- [8]. Z. Wang, L. Shen, and S. Zhu, "Synthesis of Core-Shell  $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$  Microspheres and Their Application as Recyclable Photocatalysts," *Int. J. Photoenergy*, vol. 12, pp. 1 – 6, 2012.
- [9]. X. Huang, G. Wang, M. Yang, W. Guo, and H. Gao, "Synthesis of polyaniline-modified  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$  composite microspheres and their photocatalytic application," *Mater. Lett.*, vol. 65, no. 19–20, pp. 2887–2890, Oct. 2011.
- [10]. R. Wang, X. Wang, X. Xi, R. Hu, and G. Jiang, "Preparation and Photocatalytic Activity of Magnetic  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$  Composites," *Adv. Mater. Sci. Eng.*, vol. 12, pp. 1 – 8, 2012.
- [11]. A. Houas, H. Lachheb, M. Ksibi, E. Elaloui, C. Guillard, and J.-M. Herrmann, "Photocatalytic degradation pathway of methylene blue in water," *Appl. Catal. B Environ.*, vol. 31, no. 2, pp. 145–157, May 2001.
- [12]. C. M. Ling, A. R. Mohamed, and S. Bhatia, "Performance of photocatalytic reactors using immobilized  $\text{TiO}_2$  film for the degradation of phenol and methylene blue dye present in water stream," *Chemosphere*, vol. 57, no. 7, pp. 547–554, Nov. 2004.
- [13]. L. V. Jian-Xiao, C. Ying, X. Guo-hong, Z. Ling-yun, and W. Su-fen, "Decoloration of methylene blue simulated wastewater using a UV- $\text{H}_2\text{O}_2$  combined system," *J. Water Reuse Desalin.*, vol. 1, no. 1, pp. 45 – 51, 2011.